

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001年6月21日 (21.06.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/44412 A1

(51) 国際特許分類: C10L 1/04, H01M 8/06

正 (HIZUKA, Masashi) [JP/JP]; 〒299-0205 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP00/08946

(22) 国際出願日: 2000年12月18日 (18.12.2000)

(74) 代理人: 大谷 保(OHTANI, Tamotsu); 〒105-0001 東京都港区虎ノ門3丁目8番27号 巴町アネックス2号館4階 Tokyo (JP).

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願平 11/359568
1999年12月17日 (17.12.1999) JP
特願平 2000-71430
2000年3月15日 (15.03.2000) JP
特願平 2000-122277
2000年4月24日 (24.04.2000) JP

(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒100-8321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

(72) 発明者: および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 松本寛人 (MATSUMOTO, Hiroto) [JP/JP]. 勝野 尚 (KATSUNO, Hisashi) [JP/JP]. 秋元 恭志 (AKIMOTO, Takashi) [JP/JP]. 平野 浩 (HIRANO, Hiroshi) [JP/JP]. 飯塚

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: FUEL OIL FOR FUEL CELL, FUEL OIL COMPOSITION AND AUTOMOBILE DRIVING SYSTEM

(54) 発明の名称: 燃料電池用燃料油、燃料油組成物及び自動車の駆動システム

(57) Abstract: A fuel oil for a fuel cell which comprises, as a main component, a desulfurized light naphtha having a ratio of iso-paraffins to normal paraffins of 1 or more by weight; a fuel oil for a fuel cell, characterized as containing a deep desulfurized light naphtha; a fuel oil composition which contains a deep desulfurized light naphtha and can be used for both of a hybrid engine and a fuel cell; and an automobile driving system using the composition. The above fuel oil and fuel oil composition can produce hydrogen with good efficiency, does not affect adversely on a reformation catalyst or an electrode of a fuel cell, is reduced in the deterioration of a reformation catalyst or the like, and thus can be used as a fuel oil for a fuel cell suitable for a transportation vehicle such as an automobile. The fuel oil composition can be used also as a fuel oil for a hybrid engine.

[続葉有]

BEST AVAILABLE COPY

WO 01/44412 A1



(57) 要約:

イソパラフィンとノルマルパラフィンの比率が重量比で１以上である脱硫軽質ナフサを主成分とする燃料電池用燃料油、深度脱硫軽質ナフサを含む燃料電池用燃料油、並びに深度脱硫軽質ナフサを含み、かつハイブリッドエンジン及び燃料電池に共用し得る燃料電池組成物及びこれを用いた自動車の駆動システムが開示されている。

本発明の燃料油及び燃料油組成物は、水素を効率よく製造することができ、改質触媒、燃料電池電極に対して悪影響を及ぼすことなく改質触媒等の劣化が少ない、自動車等の輸送用に適した燃料電池用燃料油として用いられる。また、該燃料油組成物は、ハイブリッドエンジンの燃料油としても用いることができる。

明 細 書

燃料電池用燃料油、燃料油組成物及び自動車の駆動システム

技術分野

本発明は、燃料電池用燃料油、それを用いた水素の製造方法と水素製造用改質装置、並びに燃料油組成物及びそれを用いた自動車の駆動システムに関する。さらに詳しくは、本発明は、ガソリン留分などの炭化水素からなる輸送用の燃料電池用燃料油、燃料油から脱硫処理を行うことなく水素を製造する方法と水素製造用改質装置、並びに、ハイブリッドエンジン及び燃料電池に共用し得る硫黄分濃度の低い燃料油組成物及びこの燃料油組成物を燃料とするハイブリッドエンジンを搭載した自動車の駆動システムに関するものである。

背景技術

近年、環境問題から新エネルギー技術が脚光を浴びており、この新エネルギー技術の一つとして燃料電池が注目されている。この燃料電池は、水素と酸素を電気化学的に反応させることにより、化学エネルギーを電気エネルギーに変換するものであって、エネルギーの利用効率が高いという特徴を有しており、民生用、産業用あるいは自動車用などとして、実用化研究が積極的になされている。

この燃料電池には、使用する電解質の種類に応じて、リン酸型、熔融炭酸塩型、固体酸化物型、固体高分子型などのタイプが知られている。一方、水素源としては、メタノール、メタンを主体とする液化天然ガス、この天然ガスを主成分とする都市ガスやプロパンを

主成分とするLPG、天然ガスを原料とする合成液体燃料、さらには石油系のナフサ、ガソリン、灯油などの石油系炭化水素油の使用が研究されている。

すなわち、燃料電池の燃料として水素を直接使用する場合、水素は気体であるために取り扱いが困難であるので、上記水素源を、改質触媒の存在下に水蒸気改質又は部分酸化改質処理して水素を取り出す方法が積極的に研究されている。この場合、水素源としてのメタノールはエネルギー密度が低く、かつ供給システムが整備されていないという問題がある。また、都市ガスやLPGはその利用が地域的に限定される上、取り扱いが困難であるなどの問題があり、特に、自動車用等輸送用の燃料電池に用いる場合は実用上大きな課題がある。

これに対し、石油系炭化水素油は常温常圧で液状であって、保管及び取扱いが容易である上、エネルギー密度が高く、かつガソリンスタンドや販売店など、供給システムが整備されていることから、水素源として有利である。

しかしながら、石油系炭化水素油は、メタノールや天然ガス系のものに比べて、触媒のコーク劣化あるいは触媒被毒などにより、その改質が容易でなく、改質触媒の寿命も比較的短いという問題がある。

一方、自動車の内燃機関エンジンを一度にすべて燃料電池エンジンに切り替えるのは困難であることから、両者に共用できる燃料が過渡期には望まれる。特に、近年、燃費向上を目指した直噴ガソリンエンジンやハイブリッドエンジンが注目を集めており、これらのエンジン用燃料と燃料電池用燃料を共用できる燃料が望まれている。

発明の開示

このような状況下で、本発明の第1の目的は、水素を効率よく製造することができ、改質触媒、燃料電池電極に対して悪影響を及ぼすことなく改質触媒等の劣化が少ない、自動車輸送用に適した燃料電池用燃料油を提供することにある。

また、本発明の第2の目的は、上記の特性を有する自動車等輸送用に適した燃料電池用燃料油を提供すると共に、この燃料油から脱硫処理を行うことなく水素を製造する方法と水素製造用改質装置を提供することにある。

さらに、本発明の第3の目的はハイブリッドエンジン及び燃料電池に共用し得る硫黄分濃度の低い燃料油組成物、及びこの燃料油組成物を燃料とするハイブリッドエンジンを搭載した自動車の駆動システムを提供することにある。

本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、イソパラフィンとノルマルパラフィンとを特定の割合で含む脱硫軽質ナフサを主成分とする燃料電池用燃料油により、第1の目的を達成し得ること、そして深度脱硫軽質ナフサを含む燃料電池用燃料油により、第2の目的を達成し得ることを見出した。さらに、深度脱硫軽質ナフサを含む燃料油組成物が、ハイブリッドエンジン及び燃料電池に共用することができると共に、ハイブリッドエンジンを搭載した自動車において、上記燃料油組成物を燃料として用い、高負荷領域での駆動を主にモーターで行い、低負荷領域での駆動を主に内燃機関で行うことにより、低い燃費で効率よく駆動することができ、第3の目的を達成し得ることを見出した。

本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち、本発明は、

- (1) イソパラフィンとノルマンパラフィンの比率が重量比で1以上である脱硫軽質ナフサを主成分とする燃料電池用燃料油（以下、燃料電池用燃料油Iと称す。）、
 - (2) 深度脱硫軽質ナフサを含有することを特徴とする燃料電池用燃料油（以下、燃料電池用燃料油IIと称す。）、
 - (3) 上記(2)の燃料電池用燃料油IIから、脱流処理を行うことなく水素を製造することを特徴とする水素の製造方法、
 - (4) 上記(2)の燃料電池用燃料油IIを用い、かつ脱硫器を有しないことを特徴とする水素製造用改質装置、
 - (5) 深度脱硫軽質ナフサを含み、かつハイブリッドエンジン及び燃料電池に共用し得ることを特徴とする燃料油組成物、及び
 - (6) ハイブリッドエンジンを搭載した自動車において、上記(5)の燃料油組成物を燃料として用い、高負荷領域での駆動を主にモーターで行い、低負荷領域での駆動を主に内燃機関で行うことを特徴とする自動車の駆動システム
- を提供するものである。

発明を実施するための最良の形態

まず、本発明の燃料電池用燃料油Iについて説明する。

本発明の燃料電池用燃料油Iは、脱硫軽質ナフサを主成分とするものである。

この脱硫軽質ナフサ（以下、DLNという）とは、C₄～C₇のノルマルパラフィン、イソパラフィン、ナフテン等から構成されるものであり、本発明においては、上記DLNに含有されるイソパラフィンとノルマルパラフィンの比率は重量比で1以上であること、

すなわち、ノルマルパラフィンに対しイソパラフィンの割合が大きいことが必要である。この値が1より小さい場合は、水素の製造効率が十分でなく、また、改質触媒、燃料電池電極に対して悪影響を及ぼす。このような観点から、上記イソパラフィンとノルマルパラフィンの比率は1.5以上、更に2以上であることが好ましい。

D L Nは、通常、原油を常圧蒸留装置でライトナフサとして分留し、ナフサ脱硫装置で脱硫するか、あるいは原油を常圧蒸留装置でフルレンジナフサとして分留し、ナフサ脱硫装置で脱硫した後、ライトナフサを分留することにより得られるものであり、本発明に係るイソパラフィンリッチのD L Nは、上記D L Nを異性化处理等することにより得ることができる。異性化处理方法としては当業界において通常用いられる方法をいずれも用いることができるが、特に、白金担持アルミナ系触媒、白金担持ゼオライト触媒、白金担持強酸性担体触媒に通油するなどの方法により得ることができる。

また、本発明においては、脱硫軽質ナフサを例えば上記方法等により異性化し、イソパラフィンとノルマルパラフィンの比率を、原料の脱硫軽質ナフサに対して増大させることができ、このような異性化脱硫軽質ナフサを燃料電池用燃料油として使用することができ、又は軽質ナフサを例えば上記方法等により異性化し、イソパラフィンとノルマルパラフィンの比率を、原料の軽質ナフサに対して増大させた後に脱硫することができ、このような異性化脱硫軽質ナフサを燃料電池用燃料油として使用することができる。

このようなD L Nは、その硫黄含有量が好ましくは1重量ppm以下、更に好ましくは0.1重量ppm以下のものである。硫黄含有量が上記値より多い場合は触媒の硫黄被毒が起こり、改質触媒、部分酸化触媒の劣化などの問題が生じることがある。

本発明に用いられるDLNは、その炭素原子／水素原子比が0.45より小さいことが好ましい。この値が小さい程水素の生成効率に優れ、また、改質触媒、燃料電池電極に対して悪影響を及ぼす程度が少なくなる。

また、DLN中の芳香族分は1重量%以下であることが好ましい。芳香族分が上記量を越える場合は水素の生成効率に劣る場合がある。

更に、本発明の燃料電池用燃料油は、その蒸気圧が0.098MPa以下であることが好ましい。蒸気圧が0.098MPaを越える場合はタンク強度の増強が必要であったり、炭化水素の大気への放出が問題となり好ましくない場合がある。従って、本発明においては、該蒸気圧は0～0.098MPaの範囲内にあることが更に好ましい。

上記DLNは、これにより製造される水素の純度が高く、水素分圧の低下が小さいなどの特徴を有するため、燃料電池用の水素の製造に好適である。特に、液体である点等から自動車等輸送用の燃料電池に適している。

DLNから水素を生成するには、先ずDLNを必要に応じて脱硫する。脱硫法としては、通常、水素化脱硫法が用いられ、その方法はCo-Mo／アルミナあるいはNi-Mo／アルミナなどの水素化脱硫触媒とZnOなどの硫化水素吸着剤を用い、常圧～5MPaの圧力下、温度200～400℃の条件で行う。

次いで、前記必要に応じて脱硫したDLNに水蒸気改質や部分酸化を行う。本発明によれば、水蒸気改質触媒等への炭素析出がなく効率的に水素を製造できる燃料油を得ることができる。

水蒸気改質の方法には特に制限はないが、通常以下のような方法

で行われる。まず、この水素製造方法に用いる水蒸気改質触媒としては、特に制限はないが、次のものが好適に用いられる。

まず、担持金属としては、ニッケル (Ni)、ジルコニウム (Zr) あるいはルテニウム (Ru)、ロジウム (Rh)、白金 (Pt) などの貴金属が挙げられる。これらは単独でもよいし、2 種以上を組合わせて用いてもよい。

これらの中でも、Ru を担持する触媒が特に望ましく、水蒸気改質反応中の炭素析出を抑制する効果が大きい。この Ru の担持量については、担体基準で 0.05 ~ 20 重量% が好ましく、さらには、0.05 ~ 15 重量%、特に 0.1 ~ 2 重量% が好ましい。担持量が 0.05 重量% 未満では、水蒸気改質反応の活性が極度に低下する場合があり好ましくなく、20 重量% を越えても活性の顕著な増加は得られ難い。

また、担持金属の組合わせの具体例としては、Ru とジルコニウムとを担持したものが挙げられる。Ru とジルコニウムは同時に担持してもよく、別々に担持してもよい。ジルコニウムの含有量は、 ZrO_2 に換算して、担体基準で 0.5 ~ 20 重量% が好ましく、さらには、0.5 ~ 15 重量% が好ましい。この種の担持金属の場合、さらにコバルトまたはマグネシウムあるいはその両方を添加したものが好適なものとして挙げられる。ここでコバルトの含有量は、コバルト/ルテニウムの原子比で、0.01 ~ 30 が好ましく、さらには、0.1 ~ 30 が好ましい。マグネシウムの含有量は、マグネシア (MgO) 換算で 0.5 ~ 20 重量% が好ましく、さらには 0.5 ~ 15 重量% が好適である。

一方、水蒸気改質に使用する触媒の担体としては、無機酸化物が用いられ、具体的には、アルミナ、シリカ、ジルコニア、マグネシ

ア及びそれらの混合物が挙げられる。これらの中でもアルミナとジルコニアが特に好ましい。

水蒸気改質用触媒の好ましい態様の一つとして、Ruをジルコニアに担持した触媒がある。このジルコニアは、単体のジルコニア (ZrO_2) でも良いし、マグネシアのような安定化成分を含む安定化ジルコニアでも良い。安定化ジルコニアとしては、マグネシア、イットリア、セリア等を含むものが好適である。

水蒸気改質用触媒の好ましい態様の一つとしては、Ruとジルコニウム、又はRuとジルコニウムの他にさらにコバルトまたはマグネシウムあるいはその両方をアルミナ担体に担持した触媒を挙げることができる。アルミナとしては特に耐熱性と機械的強度に優れる α -アルミナが好ましい。

次に、水素の製造においては、水蒸気 (S) とDLNに由来する炭素 (C) との比 S/C (モル比) が、通常1.5 ~ 5、好ましくは2 ~ 4、特に好ましくは2 ~ 3の範囲で水蒸気改質を行うのが有利である。 S/C (モル比) が5より高い状態で水蒸気改質を行うと過剰の水蒸気を作る必要があり、熱ロスが大きく、水素製造の効率が低下する。また、 S/C が1.5を下回ると水素の発生量が低下してしまうため好ましくない。

さらに水素の製造においては、水蒸気改質触媒層の入口温度を630℃以下に保って水蒸気改質を行う方法が好ましい。

水蒸気改質触媒層入口温度は、酸素添加により上昇する傾向にあるので、これをコントロールする必要がある。入口温度が630℃を超えると、原料炭化水素の熱分解が促進され、生成したラジカル経路で触媒あるいは反応管壁に炭素が析出し運転が困難になる場合があるためである。

なお、触媒層出口温度は、特に制限はないが、好ましくは650～800℃で行う。触媒層出口温度が650℃未満では水素の生成量が充分でなく、800℃を越える温度で反応するにはリアクターを特に耐熱性材料にする必要がある場合があり、経済性の点で好ましくないからである。

水素の製造においては、反応圧力は常圧～3MPa、さらには常圧～1MPaであることが好ましい。また、DLNの流量については、LHSVで、通常0.1～100h⁻¹、好ましくは0.2～50h⁻¹の範囲である。

なお、水素の製造においては、上記DLNは上記水蒸気改質と部分酸化を組み合わせ水素を製造する場合に使用しても効率的に水素を製造できる。

部分酸化反応は、好ましくはルテニウムなどの貴金属やニッケルなどを耐熱性酸化物に担持した触媒下、通常、反応圧力が常圧～5MPa、反応温度400～1,100℃、酸素/炭素比0.2～0.8、LHSV0.1～100h⁻¹で行われる。また、水蒸気添加する場合は、通常、S/C比0.4～4で行う。

上記水素の製造方法においては、上記水蒸気改質により得られるCOが水素生成に悪影響を及ぼすため、これを反応によりCO₂としてCOを除くことが好ましい。

次に、本発明の燃料電池用燃料油IIについて説明する。

本発明の燃料電池用燃料油IIは、深度脱硫軽質ナフサを含むものであって、ここで脱硫軽質ナフサとは、前述の燃料電池用燃料油Iにおいて説明したように、C₄～C₇のノルマルパラフィン、イソパラフィン、ナフテン等から構成され、通常、原油を常圧蒸留装置でライトナフサとして分留し、ナフサ脱硫装置で脱硫するか、ある

いは原油を常圧蒸留装置でフルレンジナフサとして分留し、ナフサ脱硫装置で脱硫した後、ライトナフサを分留することにより得られるものである。

本発明における「深度脱硫軽質ナフサ」とは、沸点が、通常40～100℃程度であり、 $C_4 \sim C_7$ のノルマルパラフィン、イソパラフィン、ナフテン等から構成され、上記脱硫軽質ナフサを、その硫黄含有量が、通常0.5重量ppm以下、好ましくは0.1重量ppm以下、更に好ましくは0.05重量ppm以下、特に好ましくは0.02重量ppm以下となるように処理したもの、またはナフサの脱硫を通常の脱硫処理よりも厳しい条件下で脱硫したナフサをいう。硫黄含有量が上記範囲より多い場合は改質触媒の硫黄被毒が起こり、改質触媒、部分酸化触媒の劣化などの問題が生じ好ましくない。

上記深度脱硫軽質ナフサは、例えば、 $Co \cdot Mo$ ／アルミナ、 $Ni \cdot W$ ／アルミナ等のナフサ脱硫装置で一般に使用される触媒の存在下、通常1.0～2.5MPaの圧力下、温度250～350℃、液空間速度(LHSV)3～10hr⁻¹、水素／原料油50～150m³／klの条件で、原料油と水素を反応させることにより得ることができる。

本発明における深度脱硫軽質ナフサは、例えば、上記方法により得られた脱硫軽質ナフサを、上記脱硫方法の範囲内においてこれを再度あるいは複数回繰り返し行うことにより調製することができる。更に、本発明の深度脱硫軽質ナフサは、上記1回ないし複数回の脱硫処理により得られた脱硫軽質ナフサに更に下記特定の触媒を用いた吸着脱硫を行うことにより得ることができる。すなわち、この吸着脱硫に用いることができる触媒としては、例えば、活性炭、活

性炭繊維、シリカゲル、疎水性シリカ、ゼオライト、金属交換ゼオライト、アルカリ／アルカリ土類金属の酸化物、水酸化物、亜硫酸塩水和物などの化合物塩、または、P b, S n, F e, N i, C o, M n, C r, C u, Z n等の金属、その酸化物、これらの混合物、複合酸化物あるいはこれらをシリカ、アルミナ、シリカーアルミナ、チタニア、ジルコニア、マグネシア、酸化亜鉛、白土、珪藻土、粘土などの担体に担持したもの、更に、これらにアルカリ／アルカリ土類金属、C e, L a, Yなどの希土類金属などを担持したものを挙げることができる。また、P t, P d, R h, R u等の貴金属を上記担体に担持したものも使用することができる。

ここで、上記P b, S n, F e, N i, C o, C u等の金属あるいはP t, P d, R h, R u等の貴金属としては、予め還元処理したものを使用することが好ましい。

また、上記吸着脱硫に用いることのできる触媒としては、P b, S n, F e, N i, C o, M n, C r, C u, Z nを単独あるいは組み合わせて担体に担持したものが好ましく挙げられる。また、これらにアルカリ／アルカリ土類金属、C e, L a, Yなどの希土類金属を添加したものも好ましく使用することができる。これらの金属としては、予め還元処理したものをを用いることが好ましく、また、炭酸ガス等で処理し安定化させたものを使用することもできる。

本発明においては、深度脱硫軽質ナフサに到達しない脱硫軽質ナフサ（例えば、硫黄含有量が0.5重量ppmを超えるもの）に、上記種々の触媒による吸着脱硫を行って、深度脱硫軽質ナフサを得ることも一つの好ましい態様である。

特に、ハイブリッドエンジン及び燃料電池に共用することができる燃料油組成物に用いる深度脱硫軽質ナフサの場合、例えば、水素

化精製法により脱硫処理したのち、更に必要に応じて、ニッケル系吸着脱硫剤などにより脱硫処理して得ることができる。

上記水素化精製法においては、脱硫触媒として、通常ニッケル、コバルト、モリブデン、タングステンなどの遷移金属を適当な割合で混合したものを金属、酸化物、硫化物などの形態でアルミナを主成分とする担体に担持させたものが用いられる。反応条件は、例えば反応温度 250～400℃、圧力 2～10 MPa・G、水素／油モル比 2～10、液時空間速度 (LHSV) 1～5 h⁻¹などの条件が用いられる。

一方、上記ニッケル系吸着脱硫剤としては、適当な担体上に、ニッケルが金属ニッケルとして、脱硫剤全量に基づき、通常 30 重量%以上、好ましくは 50～70 重量%の範囲で担持されたものが用いられる。

また、担体としては、多孔質担体が好ましく、特に多孔質の無機酸化物が好ましい。このようなものとしては、例えばシリカ、アルミナ、シリカーアルミナ、チタニア、ジルコニア、マグネシア、酸化亜鉛、白土、粘土及び珪藻土などを挙げることができる。これらは単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせ用いてもよい。これらの中で、特にシリカーアルミナが好適である。

また、この吸着脱硫剤においては、ニッケルに、必要に応じ、銅、コバルト、鉄、マンガン、クロムなどの他の金属を少量混在させてもよい。

上記ニッケル系吸着脱硫剤を用いて、軽質ナフサを脱硫処理する方法としては、例えば以下に示す方法を用いることができる。

まず、該ニッケル系吸着脱硫剤が充填された脱硫塔に、予め水素を供給し、150～400℃程度の温度において、ニッケル系吸着

脱硫剤の還元処理を行う。次に、軽質ナフサを、脱硫塔中を上向き又は下向きの流れで通過させ、温度：常温～400℃程度、圧力：常圧～1MPa・G程度、液空間速度（LHSV）：0.02～10h⁻¹程度の条件で脱硫処理する。この際、必要により、少量の水素を共存させてもよい。

本発明の燃料電池用燃料油IIは、このようにして得られた深度脱硫軽質ナフサを含有するものであるが、好ましくは、これを少なくとも10容量%、更に少なくとも50容量%含有することが好ましい。深度脱硫軽質ナフサの含有量が10容量%より少ない場合は改質触媒を劣化させる恐れがあり好ましくない場合がある。本発明の燃料油としては、種々の硫黄含有量の深度脱硫軽質ナフサを上記含有量で目的に応じて適宜含有し、また必要に応じて他の基材と混合したものを用いることができる。

なお、本発明の燃料電池用燃料油IIにおいては、上記深度脱硫軽質ナフサと混合可能な基材を組み合わせて使用することができるが、このような混合可能な基材としては、アルキレート（ALK）、メチルターシャリーブチルエーテル（MTBE）、イソペンタン、脱硫軽質ナフサ（本発明の深度脱硫軽質ナフサを除く）、異性化脱硫軽質ナフサ、脱硫重質ナフサ等を挙げることができる。

上記のようにして得られた本発明の燃料電池用燃料油IIは、前記深度脱硫軽質ナフサの硫黄含有量と同様の理由から、その硫黄含有量が1重量ppm以下、更に0.5重量ppm以下、特に0.1重量ppm以下、特には0.05重量ppm以下であることが好ましい。

また、本発明の燃料電池用燃料油IIは、その芳香族分が1重量%以下であることが好ましい。芳香族分が上記量を超える場合は水素の生成効率に劣る場合がある。

更に、本発明の燃料電池用燃料油IIは、その蒸気圧が0.098 MPa以下であることが好ましい。蒸気圧が0.098 MPaを超える場合はタンク強度の増強が必要であったり、炭化水素の大気への放出が問題となり好ましくない場合がある。従って、本発明においては、該蒸気圧は0～0.098 MPaの範囲内にあることが更に好ましい。

本発明の燃料電池用燃料油IIは、これにより製造される水素の純度が高く、水素分圧の低下が小さいなどの特徴を有するため、燃料電池用の水素の製造に好適である。特に、液体である点等から自動車等輸送用の燃料電池に適している。

燃料電池用燃料油IIから水素を生成するには、通常先ず該燃料油IIを必要に応じて脱硫する。脱硫法については、前述の燃料電池用燃料油Iにおいて説明したとおりであるが、本発明においては、上記のような深度脱硫軽質ナフサを使用する点から、このような深度脱硫軽質ナフサの使用量によっては上記脱硫工程を除くことも可能である。

次いで、前記必要に応じて脱硫した燃料油に水蒸気改質や部分酸化を行う。本発明によれば、水蒸気改質触媒等への炭素析出がなく効率的に水素を製造できる燃料油を得ることができる。

上記の水蒸気改質法及び部分酸化法における触媒や反応条件などについては、前述の燃料電池用燃料油Iにおいて説明したとおりである。

なお、水素の製造において、燃料油として、深度脱硫軽質ナフサを含む本発明の燃料電池用燃料油IIを用いる場合には、前述のように、深度脱硫軽質ナフサの含有量によっては、前記の脱硫工程における脱硫処理を除くことが可能である。従って、このような水素の

製造に用いる水素製造用改質装置としては、場合により脱硫器を設けないものを使用することも可能である。すなわち、水素製造用改質装置は、一般に燃料油に上述の脱硫工程を行う脱硫器、これに続き、脱硫された燃料油に上述の水蒸気改質や部分酸化工程を行い水素を得るための改質器、及び、改質ガスから上記COを除く工程を行う変成器から主として構成されるが、本発明においては、燃料油として深度脱硫軽質ナフサを使用することにより、上記の脱硫器を設けることなく直接改質器に燃料油を導入することができる水素製造用改質装置を提供することができる。

本発明は、上記燃料油I及びIIを燃料として用いる燃料電池をも提供するものである。上記燃料油から得られた水素含有ガスは、各種の H_2 燃焼型燃料電池に好適に使用することができ、特に、少なくとも燃料極（負極）の電極に白金（白金触媒）を用いるタイプの各種の H_2 燃焼型燃料電池（リン酸型燃料電池、KOH型燃料電池、固体高分子型燃料電池をはじめとする低温作動型燃料電池など）への供給燃料として有利に利用することができる。

次に、本発明の燃料油組成物について説明する。

本発明の燃料油組成物は、ハイブリッドエンジン及び燃料電池に共用することができ、かつ深度脱硫軽質ナフサを含むものである。上記深度脱硫軽質ナフサの硫黄分濃度及び調製方法については、前述の燃料電池用燃料油IIにおいて説明したとおりである。

本発明の燃料油組成物においては、基材として、上記深度脱硫軽質ナフサを、好ましくは10容量%以上、より好ましくは50容量%以上、さらに好ましくは80容量%以上含有するものを用いることが有利である。

また、この深度脱硫軽質ナフサと混合し得る他の基材としては、

例えばアルキレート、メチル-tert-ブチルエーテル、イソペンタン、深度脱硫処理していない通常の脱硫軽質ナフサ、異性化脱硫軽質ナフサ、深度脱硫重質ナフサ、深度脱硫処理していない通常の脱硫重質ナフサなどの中から選ばれる少なくとも一種を挙げることができる。

本発明の燃料油組成物においては、硫黄分濃度は1重量ppm以下が好ましい。この濃度が1重量ppmを超えると、燃料電池用の燃料として用いた場合に、改質触媒を被毒させ、触媒寿命の低下をもたらす原因となる。より好ましい硫黄分濃度は0.5重量ppm以下であり、特に0.1重量ppm以下が好適である。

また、本発明の燃料油組成物は、ハイブリッドエンジン用としても用いられるので、清浄分散剤を含むものが好ましい。この清浄分散剤の含有量は、10～1000重量ppmの範囲が好ましい。この量が10重量ppm未満では清浄分散剤を添加した効果が十分に発揮されないおそれがあり、一方、1000重量ppmを超えると燃料電池用として用いた場合に改質触媒に悪影響を及ぼす原因となる。清浄分散剤の添加効果及び改質触媒に対する影響などを考慮すると、この清浄分散剤のより好ましい含有量は50～500重量ppmの範囲である。

上記清浄分散剤としては、燃料油組成物を燃料電池用として用いた場合に、改質触媒や燃料電池電極に悪影響を及ぼさないものを用いることが肝要である。このような清浄分散剤としては、効果及び該改質触媒や燃料電池電極に悪影響を及ぼさない点から、特にポリエーテルアミンが好適である。

本発明の燃料油組成物には、従来ガソリンエンジン用燃料油に慣用されている他の各種添加剤、例えば酸化防止剤、表面着火防止剤

、氷結防止剤、助燃剤、帯電防止剤、防錆剤、識別剤、着臭剤、着色剤などを、燃料電池における改質触媒や燃料電池電極に悪影響を与えない範囲で、所望により添加することができる。

本発明の燃料油組成物を燃料電池用の燃料として用い、水素を製造する場合、水蒸気改質法と部分酸化法のいずれも用いることができる。

上記の水蒸気改質法及び部分酸化法における触媒や反応条件などについては、前述の燃料電池用燃料油 I において説明したとおりである。

一方、本発明の燃料油組成物をハイブリッドエンジンの燃料として用いる場合、ハイブリッドエンジンにおける内燃機関としては、直噴ガソリンエンジンが好適である。この直噴ガソリンエンジンとは、シリンダー内に燃料が直接噴射されるエンジンのことである。この燃焼方式によると、空燃比を大きく、すなわちガソリン混合気を希薄にすることで燃費を向上させることができる。

本発明の自動車の駆動方式によると、上記のハイブリッドエンジンを搭載した自動車において、前述の本発明の燃料油組成物を燃料として用い、高負荷領域での駆動を主にモーターで行い、低負荷領域での駆動を主に内燃機関で行う方式が用いられる。そして、内燃機関は、主に当該モーターの充電のために使用するのが好ましい。

次に、本発明を実施例によりさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの例によってなんら限定されるものではない。

実施例 I

第 1 表に記載の組成及び性状を有する D L N を、A l₂ O₃ 上に P t を 0.5 重量%担持した触媒存在下、圧力 1.96 MP a、温度 160℃、液空間速度 (L H S V) 1.0 h⁻¹ の条件下、水素を導入し

異性化反応を行った。得られたD L Nの組成・性状を第1表に示す。

第 1 表

項目	異性化前 D L N	異性化後 D L N
硫黄含有量 (重量ppm)	0.30	0.27
ノルマルパラフィン 分 (w t %)	53.2	22.2
C ₄	0.4	0.2
C ₅	28.5	13.0
C ₆	23.8	8.6
C ₇	0.5	0.4
イソパラフィン 分 (w t %)	38.7	69.6
C ₄	0.0	0.2
C ₅	14.9	30.5
C ₆	21.8	36.9
C ₇	2.0	2.0
イソパラフィン/ノルマル パラフィン 比率	0.72	3.10
ナフテン分 (w t %)	6.6	7.2
芳香族分 (w t %)	1.6	1.0
オレフィン 分 (w t %)	0	0
蒸気圧 (MPa)	0.077	0.087

得られた異性化D L Nについて以下に示すように水素製造実験を行い、反応後の触媒についてコーキング試験を行なった。

水素製造実験

2基の固定床流通式反応器を連結し、下記条件にて1段目で脱硫を行い、2段目で水蒸気改質を行なった。

(1 段 目)

脱硫 触媒 : $\text{Co}-\text{Mo}$ (前 段) / ZnO (後 段)

条件 : 常 圧、温 度 330°C 、 $\text{LHSV} = 1.3 \text{ h}^{-1}$

(2 段 目)

改質 触媒 : α -アルミナ粉末に水 20 重量%を加え、ニーダーで混合・圧縮成形し直径 5 mm、長さ 5 mm の円柱状成形体とした。200 $^{\circ}\text{C}$ で3時間乾燥後、1280 $^{\circ}\text{C}$ で26時間焼成しアルミナ担体を得た。一方、ジルコニウムオキシ塩化物 ($\text{ZrO}(\text{OH})\text{Cl}$) の水溶液 (ZrO_2 換算で 2.5 g) に、3 塩化ルテニウム ($\text{RuCl}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$) (Ru 38 重量%含有) 0.66 g、硝酸コバルト ($\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 36\text{H}_2\text{O}$) 2.47 g 及び硝酸マグネシウム ($\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 26\text{H}_2\text{O}$) 6.36 g を加え、溶解するまで攪拌した。溶液の総量は 10 cc であった。この溶液を上記アルミナ担体 50 g に含浸 (ポアフィリング法) した後、120 $^{\circ}\text{C}$ で5時間乾燥し、500 $^{\circ}\text{C}$ で2時間焼成し、更に 16 ~ 32 メッシュに粒径調整した。この触媒は、担体基準で Ru を 0.5 重量%、 Zr をジルコニア換算で 5 重量%、 Co を 1.0 重量%、 Mg をマグネシア換算で 2 重量%有する。

条件 : 水蒸気 / 炭素比 1.5、原料油の $\text{LHSV} = 2.5 \text{ h}^{-1}$ 、常 圧、触媒層入口温度 500 $^{\circ}\text{C}$ 、触媒層出口温度 700 $^{\circ}\text{C}$

上記反応を 100 時間連続して行った後に二段目の触媒を抜き出し、触媒上の炭素析出率を下記のようにして測定・算出した結果、1%であった。

炭素析出率 (%) = 炭素析出した部分の長さ / 全触媒の長さ
実施例 2 ~ 5 及び比較例 1、2

下記に示す方法で深度脱硫軽質ナフサ A ~ C 及び脱硫軽質ナフサ

D（これらを総称して「DLN」という）を調製し、これらを用いて第2表に記載の組成を有する燃料油を調製した。これらの燃料油を用いて以下に示すように水素製造実験を行い反応後の触媒についてコーキング試験を行った。なお、本実施例においては、硫黄含有量はJIS-K2541に記載された方法に準じて測定した。

(1) 深度脱硫軽質ナフサA（硫黄含有量0.5重量ppm）

触媒：Co・Mo／アルミナ

反応塔運転条件：圧力1.5MPa、温度300℃、LHSV6.3
hr⁻¹、水素 /原料油比90m³/kl

分留条件：棚段数23、塔頂圧力0.10MPa、塔頂温度73℃
、リフラック ス比0.26

(2) 深度脱硫軽質ナフサB（硫黄含有量0.1重量ppm）

触媒：Co・Mo／アルミナ

反応塔運転条件：圧力1.5MPa、温度320℃、LHSV6.3
hr⁻¹、水素 /原料油比90m³/kl

分留条件：棚段数23、塔頂圧力0.10MPa、塔頂温度73℃
、リフラック ス比0.26

(3) 深度脱硫軽質ナフサC（硫黄含有量0.008重量ppm）

上記脱硫軽質ナフサBを、吸着触媒としてNi／珪藻土（Ni含有量50重量%）を充填した20cc反応器で常圧、温度140℃、LHSV0.2hr⁻¹の条件で吸着脱硫した。

(4) 脱硫軽質ナフサD（硫黄含有量4.8重量ppm）

触媒：Co・Mo／アルミナ

反応塔運転条件：圧力1.5MPa、温度270℃、LHSV6.3
hr⁻¹、水素 /原料油比90m³/kl

分留条件：棚段数23、塔頂圧力0.10MPa、塔頂温度73℃

、リフラックス比0.26

水素製造実験

固定床流通式反応器を用い水蒸気改質を行った。

触媒：実施例1の水素製造実験における2段目の改質に用いた触媒と同様にして調製したものをを用いた。

条件：水蒸気／炭素比2.5、原料油のLHSV = 5 h⁻¹、常圧、
触媒層入口温度500℃、触媒層出口温度750℃

反応管に改質触媒を充填し、上記の条件で触媒寿命（スチームリフォーミング）を転化率が100%を下回った時間で評価した。結果を第2表に示す。

第 2 表

項目	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	比較例 1	比較例 2
DLN	深度脱硫 軽質ナフサ A	深度脱硫 軽質ナフサ B	深度脱硫 軽質ナフサ C	深度脱硫 軽質ナフサ C	脱硫軽質 ナフサ D	脱硫軽質 ナフサ D
燃料油組成 (容量%)	DLN 100	DLN 100	DLN 100	DLN 70 DHN 30	DLN 100	DLN 10 ALK 90
硫黄含有量 (重量ppm) DLN中 燃料油中	0.5 0.5	0.1 0.1	0.008 0.008	0.008 0.08	4.8 4.8	4.8 2.4
触媒寿命 (hr)	200	960	10000 以 上	3300	20	36

* DHN : 脱硫重質ナフサ

* ALK : アルキレート

実施例 6～8 及び比較例 3

第3表に示す性状の燃料油組成物を調製し、下記の方法に従って性能を評価した。

(1) 燃料電池用の燃料として使用した場合の改質触媒の寿命

(イ) 改質触媒

実施例 1 の水素製造実験における 2 段目の改質に用いた触媒と同様にして調製したものをを用いた。

(ロ) 改質触媒の寿命評価

反応管に上記 (イ) の改質触媒を充填し、大気圧下、水蒸気/炭素モル比 2.5、 $LHSV\ 3\ h^{-1}$ 、触媒層入口温度 $500^{\circ}C$ 、出口温度 $750^{\circ}C$ の条件で、前記各燃料油組成物の水蒸気改質処理を行った。

以下に示す転化率が 100% を下回った時点までの時間を求め、触媒の寿命を評価した。

結果を第 3 表に示す。

< 転化率 >

$$\text{転化率 (\%)} = 100 \times B / A$$

[ただし、A は時間当たりの供給燃料油組成物中の全炭素量 (モル)、B は時間当たりの改質器出口ガス中の全炭素量 (モル) で $B = CO + CO_2 + CH_4$ である。]

によって算出した値である。なお、分析はガスクロマトグラフィー法による。

(2) ハイブリッドエンジン用の燃料として使用した場合のノズルの清浄性

ノズルの清浄性は、吸気ボードで燃料を噴射するガソリンエンジンにおけるノズルのデポジット評価方法である CRC (Coordinating Research Council) レポート No. 665 に基いて行った。

結果を第 3 表に示す。

第 3 表

			実施例 6	実施例 7	実施例 8	比較例 3
燃料油 組成物	軽質 ナフサ	種類	DLN-1 (深度 脱硫)	DLN-2 (深度 脱硫)	DLN-2 (深度 脱硫)	DLN-3 (脱硫)
		含有量 (vol%)	1 0 0	1 0 0	1 0 0	1 0 0
	ポリエーテルアミン (wtppm)		—	—	1 0 0	—
	硫黄分 (wtppm)		0 . 5	0 . 1	0 . 1	4 . 8
性 能 評 価	改質触媒の 寿命 (hr)		1000<	1000<	1000<	2 0 0
	ノズルの清浄性 *		△	○	◎	×

* 1 万マイル走行後、ノズル流量の減少率が、2 %以下を◎、4 %以下を○、5 %以下を△、5 %超を×として示した。

産業上の利用可能性

本発明のイソパラフィンとノルマルパラフィンの比率が重量比で 1 以上である脱硫軽質ナフサを主成分とする燃料油、又は深度脱硫軽質ナフサを含む燃料油を用いることにより、燃料電池に用いる水を効率よく製造することができ、改質触媒、燃料電池電極に対して悪影響を及ぼすことなく改質触媒等の劣化が少ない、自動車等の輸送用に適した燃料電池用燃料油を提供することができる。

また、深度脱硫軽質ナフサを含む燃料油は、ハイブリッドエンジン及び燃料電池に共用し得ると共に、自動車のハイブリッドエンジン用の燃料として用いた場合に、走行性能を損なうことがない。

請求の範囲

1. イソパラフィンとノルマルパラフィンの比率が重量比で1以上である脱硫軽質ナフサを主成分とする燃料電池用燃料油。
2. 脱硫軽質ナフサにおけるイソパラフィンとノルマルパラフィンの比率が重量比で1.5以上である請求の範囲1記載の燃料電池用燃料油。
3. 蒸気圧が0.098 MPa以下である請求の範囲1記載の燃料電池用燃料油。
4. 脱硫軽質ナフサを異性化し、イソパラフィンとノルマルパラフィンの重量比率を原料の脱硫軽質ナフサに対して増大させた異性化脱硫軽質ナフサ、又は軽質ナフサを異性化し、イソパラフィンとノルマルパラフィンの重量比率を原料の軽質ナフサに対して増大させた後に脱硫した異性化脱硫軽質ナフサからなる請求の範囲1記載の燃料電池用燃料油。
5. 請求の範囲第1～4のいずれかに記載の燃料油を燃料として用いる燃料電池。
6. 深度脱硫軽質ナフサを含有することを特徴とする燃料電池用燃料油。
7. 深度脱硫軽質ナフサが0.5重量ppm以下の硫黄を含有する請

求の範囲 6 記載の燃料電池用燃料油。

8. 深度脱硫軽質ナフサが0.1重量ppm以下の硫黄を含有する請求の範囲 6 記載の燃料電池用燃料油。

9. 深度脱硫軽質ナフサが0.05重量ppm以下の硫黄を含有する請求の範囲 6 記載の燃料電池用燃料油。

10. 深度脱硫軽質ナフサを少なくとも10容量%含有し、かつ1重量ppm以下の硫黄を含有する請求の範囲 6 記載の燃料電池用燃料油。

11. 深度脱硫軽質ナフサを少なくとも50容量%含有する請求の範囲 10 記載の燃料電池用燃料油。

12. 深度脱硫軽質ナフサを少なくとも50容量%含有し、かつ0.1重量ppm以下の硫黄を含有する請求の範囲 6 記載の燃料電池用燃料油。

13. 請求の範囲 6 ~ 12 のいずれかに記載の燃料油を燃料として用いる燃料電池。

14. 請求の範囲 6 ~ 12 のいずれかに記載の燃料電池用燃料油から、脱硫処理を行うことなく水素を製造することを特徴とする水素の製造方法。

15. 請求の範囲6～12のいずれかに記載の燃料電池用燃料油を用い、かつ脱硫器を有しないことを特徴とする水素製造用改質装置。

16. 深度脱硫軽質ナフサを含み、かつハイブリッドエンジン及び燃料電池に共用し得る燃料油組成物。

17. 硫黄分濃度が、1重量ppm以下である請求の範囲16記載の燃料油組成物。

18. 硫黄分濃度が、0.5重量ppm以下である請求項の範囲16記載の燃料油組成物。

19. さらに、清浄分散剤を含む請求の範囲16記載の燃料油組成物。

20. 清浄分散剤の含有量が、10～1000重量ppmである請求の範囲19記載の燃料油組成物。

21. 深度脱硫軽質ナフサ10容量%以上を含む基材を用いてなる請求の範囲16記載の燃料油組成物。

22. 基材として、深度脱硫軽質ナフサのみを用いてなる請求の範囲19記載の燃料油組成物。

23. ハイブリッドエンジンを搭載した自動車において、請求の範

図 1 6 ~ 2 2 のいずれかに記載の燃料油組成物を燃料として用い、高負荷領域での駆動を主にモーターで行い、低負荷領域での駆動を主に内燃機関で行う自動車の駆動システム。

2 4 . 駆動をモーターで行い、内燃機関は主に当該モーターの充電のために使用する請求の範囲 2 3 記載の自動車の駆動システム。

2 5 . 内燃機関が、直噴ガソリンエンジンである請求の範囲 2 3 記載の自動車の駆動システム。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/08946

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C10L1/04, H01M8/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ C10L1/04, C10G35/00, C01B3/24, H01M8/06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 6-80972, A (Sekiyu Sangyo Kasseika Center), 22 March, 1994 (22.03.94), Claim 1; Par. Nos. [0002], [0006]; [table 2]	6-12
Y	Par. Nos. [0019], [0049] (Family: none)	1-5, 13-25
Y	JP, 63-40702, A (NIPPON OIL COMPANY, LTD.), 22 February, 1988 (22.02.88), page 2, lower right column, lines 16 to 20; page 4, upper left column, lines 2 to 5 page 2, upper left column, lines 10 to 13; page 3, upper left column, lines 11 to 17 Claims (Family: none)	1-2, 4-5 3, 14-15, 17
Y	JP, 63-150380, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 23 June, 1988 (23.06.88), Claim 4 (Family: none)	1-2
Y	JP, 9-208971, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 12 August, 1997 (12.08.97), Claim 3 (Family: none)	19-20
Y	JP, 11-311136, A (Hitachi, Ltd.),	16, 23-25

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 08 March, 2001 (08.03.01)	Date of mailing of the international search report 21 March, 2001 (21.03.01)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/08946

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	09 November, 1999 (09.11.99), Claims 1, 4; Par. No. [0015] (Family: none) JP, 9-79063; A (Toyota Motor Corporation), 25 March, 1997 (25.03.97), Par. Nos. [0010] to [0012]; Fig. 10 Par. No. [0022] (Family: none)	23-24 25

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/08946

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Inventions of claims 1 to 5 relate to a fuel oil for a fuel cell which comprises, as a main component, a desulfurized light naphtha having a ratio of iso-paraffins to normal paraffins of 1 or more by weight, and inventions of claims 6 to 12 relate to a fuel oil for a fuel cell, characterized as containing a deep desulfurized light naphtha and are not dependent on any of claims 1 to 5.

The above two groups of inventions have differently defined "desulfurized light naphthas" as constituent features, respectively, as pointed out in the above, and the former group comprises the naphtha defined in claim 1 as a main component, whereas the latter does not necessarily contain the naphtha defined in claim 6 as a main component. Therefore, the two groups of inventions have only one common matter of "a fuel oil for a fuel cell", which is not a special technical feature in accordance with PCT Rule 13.2.

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☒ No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))		
Int.Cl ¹ C10L1/04, H01M8/06		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))		
Int.Cl ¹ C10L1/04, C10G35/00, C01B3/24, H01M8/06		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2001年 日本国登録実用新案公報 1994-2001年 日本国実用新案登録公報 1996-2001年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 6-80972, A (財団法人石油産業活性化センター) 22. 3月. 1994 (22. 03. 94) 請求項1, 段落【0002】、【0006】、【表2】	6-12
Y	段落【0019】、【0049】 (ファミリーなし)	1-5, 13-25
Y	JP, 63-40702, A (日本石油株式会社) 22. 2月. 1988 (22. 02. 88) 第2頁右下欄第16~20行、第4頁左上欄第2~5行 第2頁左上欄第10~13行、第3頁左上欄第11~17行 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-2, 4-5 3, 14-15, 17
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 08. 03. 01		国際調査報告の発送日 21.03.01
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 木村 敏康 印 電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き). 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 63-150380, A (出光興産株式会社) 23. 6月. 1988 (23. 06. 88) 請求項4 (ファミリーなし)	1-2
Y	JP, 9-208971, A (出光興産株式会社) 12. 8月. 1997 (12. 08. 97) 請求項3 (ファミリーなし)	19-20
Y	JP, 11-311136, A (株式会社日立製作所) 9. 11月. 1999 (09. 11. 99) 請求項1、請求項4、段落【0015】 (ファミリーなし)	16, 23-25
Y	JP, 9-79063, A (トヨタ自動車株式会社) 25. 3月. 1997 (25. 03. 97) 段落【0010】～【0012】、【図10】 段落【0022】 (ファミリーなし)	23-24 25

第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1～5は、「イソパラフィンとノルマルパラフィンの比率が重量比で1以上である脱硫軽質ナフサを主成分とする燃料電池用燃料油」に関する発明であり、請求の範囲6～12は、「深度脱硫軽質ナフサを含有することを特徴とする燃料電池用燃料油」に関する発明であって、請求の範囲1～5を引用するものではない。

そして、上記2つの発明は前者と後者で異なる定義の「脱硫軽質ナフサ」を構成とし、かつ前者にあつては主成分とし、後者にあつては必ずしも主成分としてないことから、両者に共通の事項は「燃料電池用燃料油」という点のみであり、これがPCT規則13.2における特別な技術的特徴であると認めることができない。

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。